

**PRIORITY  
DOCUMENT**

SUBMITTED OR TRANSMITTED IN  
COMPLIANCE WITH RULE 17.1(a) OR (b)



REC'D 19 OCT 2000

WIPO PCT

EP 00/9015

**Prioritätsbescheinigung über die Einreichung  
einer Patentanmeldung**

**Aktenzeichen:** 199 46 323.9

**Anmeldetag:** 28. September 1999

**Anmelder/Inhaber:** Bayer Aktiengesellschaft,  
Leverkusen/DE

**Bezeichnung:** Polymerblends enthaltend modifizierte  
Polyester

**IPC:** C 08 L, C 08 K

Die angehefteten Stücke sind eine richtige und genaue Wiedergabe der ursprünglichen Unterlagen dieser Anmeldung.

München, den 29. Juni 2000  
Deutsches Patent- und Markenamt  
Der Präsident  
Im Auftrag

Nietiedt

**Polymerblends enthaltend modifizierte Polyester**

5 Gegenstand der vorliegenden Erfindung sind Polymerblends, enthaltend modifizierte Polyester insbesondere mit verbesserten optischen Eigenschaften sowie deren Verwendung.

10 In der EP-A 0603664 werden z.B. Polymerblends beschrieben, die aus Polycarbonaten und ABS-Polymerisaten bestehen. Weitere Beispiele für Polymerblends enthaltend Polycarbonate sind in der JP-A10245481 und der EP-A 846729 zu finden.

15 Darüber hinaus werden Polycarbonate in Verbindung mit Ppropfpolymerisaten in der EP-A 0785234 beschrieben.

20 Daneben ist auch der Einsatz von Polymerblends bekannt, die Polyethylenterephthalate und Polyethylennaphthalate enthalten. Hauptanwendungsgebiete sind hierbei die Herstellung von Kunststoff-Flaschen mit verbesserten Eigenschaften. Dieses Thema wird zum Beispiel in den folgenden Übersichtsartikeln behandelt:

- E. Nunes, J. Agnelli, R. Rossi: Brazil. Polim. Tecnol. 8 (1998) 55-67
- 25 - M. Xanthos, H. Warth, S. Fakirov Ed., Transreactions in Condensation Polymers, Kap. Ziffer 5, Wiley, 1999.

30 In der WO 9824844 ist ferner die Umesterungskontrolle in Polyethylenterephthalaten/Polyethylennaphthalat-Blends geschildert. Die UV-Eigenschaften von Flaschen werden ferner in JP-A 09302205 beschrieben.

Verbesserungsbedürftig sind vor allem bei Sichtteilen die optischen Eigenschaften insbesondere der Rohton und die Farbeffekte.

35 Aufgabe der vorliegenden Erfindung ist demgemäß, Polymerblends zur Verfügung zu stellen, die eine Farbverbesserung, Rohtonverbesserung (Rohtonaufhellung) und

ein verbessertes Verarbeitungsverhalten beispielsweise bei der Herstellung von dünnwandigen Teilen aufweisen.

5 Diese Aufgabe wird erfindungsgemäß gelöst durch Polymerblends enthaltend eine Komponente ausgewählt aus der Gruppe Poly(ester)carbonat A, Pffropfpolymerisat B oder Mischungen hiervon, Polyalkylennaphthalat C sowie gegebenenfalls eine weitere Komponente D ausgewählt aus Vinyl(co)polymerisat D1, Polyalkylenterephthalat D2 oder Mischungen hiervon, wobei Mischungen aus Polycarbonat, Polyalkylennaphthalat und gegebenenfalls Polyalkylenterephthalat kein Tetrafluor-  
10 ethylenpolymer enthalten.

Erfindungsgemäß bevorzugt sind insbesondere Polymerblends enthaltend:

1. Polycarbonat, Polyalkylenterephthalat, vorzugsweise Polybutylenterephthalat,  
15 und Polyalkylennaphthalat,
2. Polycarbonat, Pffropfpolymerisat und Polyalkylennaphthalat,
3. Pffropfpolymerisat und Polyalkylennaphthalat,
- 20 4. Pffropfpolymerisat, Polyalkylenterephthalat und Polyalkylennaphthalat oder
5. Polycarbonat und Polyalkylennaphthalat ausgenommen Tetrafluorethylenpolymerisat.

25 Die Pffropfpolymerisate können ganz oder teilweise durch Vinyl(co)polymerisate ersetzt werden.

Die genannten Polymerblends enthalten vorzugsweise 0,2 bis 99 Gew.-Teile Polyalkylennaphthalat. Besonders bevorzugt sind 0,4 bis 85 Gew.-Teile, ganz besonders bevorzugt sind 0,6 bis 75 Gew.-Teile Polyalkylennaphthalat. Die Polymerblends  
30

können 1 bis 99,8 Gew.-Teile Polycarbonat A, Ppropfpolymerisat B oder Gemische hiervon enthalten. Bevorzugt sind 15 bis 99,6 Gew.-Teile, besonders bevorzugt sind 25 bis 99,4 Gew.-Teile.

- 5 Vinyl(co)polymerisat und Polyalkylenterephthalat sowie Gemische hiervon können mit bis zu 85 Gew.-Teilen in den Polymerblends enthalten sein. Bevorzugt sind 3 bis 80 Gew.-Teile, insbesondere 5 bis 75 Gew.-Teile. Die Summe der eingesetzten Komponenten A bis D beträgt 100 Gew.-Teile.

- 10 Für die Gruppe 1 sind folgende Mengen bevorzugt:

Polycarbonat 5-98 Gew.-Teile, besonders bevorzugt 10-95 Gew.-Teile, ganz besonders bevorzugt 15-80 Gew.-Teile;

- 15 Polyalkylenterephthalat 0-80 Gew.-Teile, besonders bevorzugt 5-75 Gew.-Teile, ganz besonders bevorzugt 15-75 Gew.-Teile, höchst bevorzugt 20-70 Gew.-Teile;

Polyalkylennaphthalat 1-80 Gew.-Teile, besonders bevorzugt 2-70 Gew.-Teile.

- 20

In Fällen, in denen die Polycarbonat/Polyalkylennaphthalat-Mischungen >0 Gew.-Teile Polyalkylenterephthalat enthalten, ist dieses vorzugsweise in Mengen von 5 bis 75 Gewichts-Teilen enthalten.

- 25 Für die Gruppe 2 sind folgende Mengen bevorzugt (Gew.-Teile):

		besonders bevorzugt	ganz besonders bevorzugt
Polycarbonat	5-98	10-95	20-90
Ppropfpolymerisat	1-80	3-60	5-40
Polyalkylennaphthalat	0,2-80	0,4-60	1-40
Vinyl(co)polymerisat	0-60	1-40	2-30

Für die Gruppe 3 sind folgende Mengen bevorzugt (Gew.-Teile):

		besonders bevorzugt	ganz besonders bevorzugt	höchst bevorzugt
Pfropfpolymerisat	1-80	3-60	5-40	
Polyalkylennaphthalat	0,2-80	0,4-60	1-40	
Vinyl(co)polymerisat/ Polyalkylenterephthalat	0-95	5-90	10-85	40-80

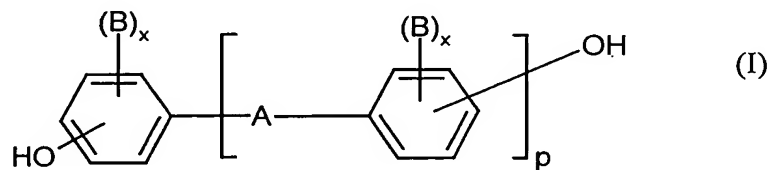
- 5 Ferner betrifft die vorliegende Erfindung auch die Verwendung der Polymerblends zur Herstellung von Formkörpern.

#### Komponente A

- 10 Erfindungsgemäß geeignete aromatische Polycarbonate und/oder aromatische Polyester-carbonate gemäß Komponente A sind literaturbekannt oder nach literaturbe-  
kannten Verfahren herstellbar (zur Herstellung aromatischer Polycarbonate siehe bei-  
spielsweise Schnell, "Chemistry and Physics of Polycarbonates", Interscience  
Publishers, 1964 sowie die DE-A 1 495 626, DE-A 2 232 877, DE-A 2 703 376, DE-  
15 A 2 714 544, DE-A 3 000 610, DE-A 3 832 396; zur Herstellung aromatischer  
Polyestercarbonate z.B. DE-A 3 077 934).

- Die Herstellung aromatischer Polycarbonate erfolgt z.B. durch Umsetzung von  
Diphenolen mit Kohlensäurehalogeniden, vorzugsweise Phosgen und/oder mit aro-  
20 matischen Dicarbonsäuredihalogeniden, vorzugsweise Benzoldicarbonsäuredihalo-  
geniden, nach dem Phasengrenzflächenverfahren, gegebenenfalls unter Verwendung  
von Kettenabbrechern, beispielsweise Monophenolen und gegebenenfalls unter Ver-  
wendung von trifunktionellen oder mehr als trifunktionellen Verzweigern, beispiels-  
weise Triphenolen oder Tetraphenolen.

Diphenole zur Herstellung der aromatischen Polycarbonate und/oder aromatischen Polyestercarbonate sind vorzugsweise solche der Formel (I)

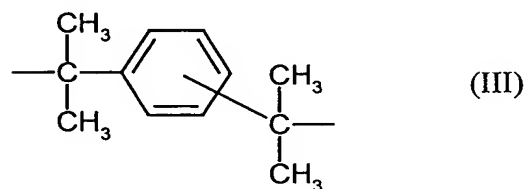
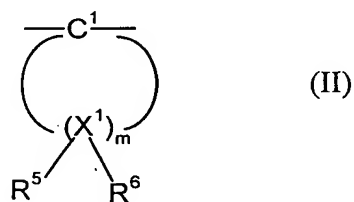


5 wobei

A eine Einfachbindung, C<sub>1</sub>-C<sub>5</sub>-Alkylen, C<sub>2</sub>-C<sub>5</sub>-Alkyliden, C<sub>5</sub>-C<sub>6</sub>-Cycloalkylen, -O-, -SO-, -CO-, -S-, -SO<sub>2</sub>-, C<sub>6</sub>-C<sub>12</sub>-Arylen, an das weitere aromatische gegebenenfalls Heteroatome enthaltende Ringe kondensiert sein können,

10

oder ein Rest der Formel (II) oder (III)



15

B jeweils Wasserstoff, C<sub>1</sub>-C<sub>12</sub>-Alkyl, vorzugsweise Methyl, Halogen, vorzugsweise Chlor und/oder Brom,

20 x jeweils unabhängig voneinander 0, 1 oder 2,

p 1 oder 0 sind, und

R<sup>5</sup> und R<sup>6</sup> für jedes X<sup>1</sup> individuell wählbar, unabhängig voneinander Wasserstoff oder C<sub>1</sub>-C<sub>6</sub>-Alkyl, vorzugsweise Wasserstoff, Methyl oder Ethyl,

5

X<sup>1</sup> Kohlenstoff und

m eine ganze Zahl von 4 bis 7, bevorzugt 4 oder 5 bedeuten, mit der Maßgabe, dass an mindestens einen Atom X<sup>1</sup>, R<sup>5</sup> und R<sup>6</sup> gleichzeitig Alkyl sind.

10

Bevorzugte Diphenole sind Hydrochinon, Resorcin, Dihydroxydiphenole, Bis-(hydroxyphenyl)-C<sub>1</sub>-C<sub>5</sub>-alkane, Bis-(hydroxyphenyl)-C<sub>5</sub>-C<sub>6</sub>-cycloalkane, Bis-(hydroxyphenyl)-ether, Bis-(hydroxyphenyl)-sulfoxide, Bis-(hydroxyphenyl)-ketone, Bis-(hydroxyphenyl)-sulfone und  $\alpha,\alpha$ -Bis-(hydroxyphenyl)-diisopropyl-benzole sowie deren kernbromierte und/oder kernchlorierte Derivate.

15

Besonders bevorzugte Diphenole sind 4,4'-Dihydroxydiphenyl, Bisphenol-A, 2,4-Bis(4-hydroxyphenyl)-2-methylbutan, 1,1-Bis-(4-hydroxyphenyl)-cyclohexan, 1,1-Bis(4-hydroxyphenyl)-3.3.5-trimethylcyclohexan, 4,4'-Dihydroxydiphenylsulfid, 4,4'-Dihydroxydiphenyl-sulfon sowie deren di- und tetrabromierten oder chlorierten Derivate wie beispielsweise 2,2-Bis(3-Chlor-4-hydroxyphenyl)-propan, 2,2-Bis-(3,5-dichlor-4-hydroxyphenyl)-propan oder 2,2-Bis-(3,5-dibrom-4-hydroxyphenyl)-propan.

20

Insbesondere bevorzugt ist 2,2-Bis-(4-hydroxyphenyl)-propan (Bisphenol-A).

25

Es können die Diphenole einzeln oder als beliebige Mischungen eingesetzt werden.

Die Diphenole sind literaturbekannt oder nach literaturbekannten Verfahren erhältlich.

30

Für die Herstellung der thermoplastischen, aromatischen Polycarbonate sind geeignete Kettenabbrecher beispielsweise Phenol, p-Chlorphenol, p-tert.-Butylphenol oder 2,4,6-Tribromphenol, aber auch langkettige Alkylphenole, wie 4-(1,3-Tetramethylbutyl)-phenol gemäß DE-OS 2 842 005 oder Monoalkylphenol bzw. Dialkylphenole mit insgesamt 8 bis 20 C-Atomen in den Alkylsubstituenten, wie 3,5-di-tert.-Butylphenol, p-iso-Octylphenol, p-tert.-Octylphenol, p-Dodecylphenol und 2-(3,5-Dimethylheptyl)-phenol und 4-(3,5-Dimethylheptyl)-phenol. Die Menge an einzusetzenden Kettenabbrechern beträgt im allgemeinen zwischen 0,5 Mol-%, und 10 Mol-%, bezogen auf die Molsumme der jeweils eingesetzten Diphenole.

10

Die thermoplastischen, aromatischen Polycarbonate haben mittlere Gewichtsmittelmolekulargewichte ( $M_w$ , gemessen z.B. durch Ultrazentrifuge oder Streulichtmessung) von 10 000 bis 200 000, vorzugsweise 20 000 bis 80 000.

15

Die thermoplastischen, aromatischen Polycarbonate können in bekannter Weise verzweigt sein, und zwar vorzugsweise durch den Einbau von 0,05 bis 2,0 Mol-%, bezogen auf die Summe der eingesetzten Diphenole, an dreifunktionellen oder mehr als dreifunktionellen Verbindungen, beispielsweise solchen mit drei und mehr phenolischen Gruppen.

20

Geeignet sind sowohl Homopolycarbonate als auch Copolycarbonate. Zur Herstellung erfindungsgemäßer Copolycarbonate gemäß Komponente A können auch 1 bis 25 Gew.-%, vorzugsweise 2,5 bis 25 Gew.% (bezogen auf die Gesamtmenge an einzusetzenden Diphenolen) Polydiorganosiloxane mit Hydroxy-aryloxy-Endgruppen eingesetzt werden. Diese sind bekannt (s. beispielsweise US-Patent 3 419 634) bzw. nach literaturbekannten Verfahren herstellbar. Die Herstellung Polydiorganosiloxan-haltiger Copolycarbonate wird z.B. in DE-OS 3 334 782 beschrieben.

25

30

Bevorzugte Polycarbonate sind neben den Bisphenol-A-Homopolycarbonaten die Copolycarbonate von Bisphenol-A mit bis zu 15 Mol-%, bezogen auf die Molsum-



men an Diphenolen, anderen als bevorzugt bzw. besonders bevorzugt genannten Diphenole, insbesondere 2,2-Bis(3,5-dibrom-4-hydroxyphenyl)-propan.

5 Aromatische Dicarbonsäuredihalogenide zur Herstellung von aromatischen Polyester-carbonate sind vorzugsweise die Disäuredichloride der Isophthalsäure, Terephthalsäure, Diphenylether-4,4'-dicarbonsäure und der Naphthalin-2,6-dicarbonsäure.

Besonders bevorzugt sind Gemische der Disäuredichloride der Isophthalsäure und der Terephthalsäure im Verhältnis zwischen 1:20 und 20:1.

10

Bei der Herstellung von Polyester-carbonaten wird zusätzlich ein Kohlensäurehalogenid, vorzugsweise Phosgen als bifunktionelles Säurederivat mitverwendet.

15

Als Kettenabbrecher für die Herstellung der aromatischen Polyester-carbonate kommen außer den bereits genannten Monophenolen noch deren Chlorkohlensäureester sowie die Säurechloride von aromatischen Monocarbonsäuren, die gegebenenfalls durch  $C_1$ - $C_{22}$ -Alkylgruppen oder durch Halogenatome substituiert sein können, sowie aliphatische  $C_2$ - $C_{22}$ -Monocarbonsäurechloride in Betracht.

20

Die Menge an Kettenabbrechern beträgt jeweils 0,1 bis 10 Mol-%, bezogen im Falle der phenolischen Kettenabbrecher auf Mole Diphenole und Falle von Monocarbonsäurechlorid-Kettenabbrecher auf Mole Dicarbonsäuredichloride.

25

Die aromatischen Polyester-carbonate können auch aromatische Hydroxycarbonsäuren eingebaut enthalten.

30

Die aromatischen Polyester-carbonate können sowohl linear als auch in bekannter Weise verzweigt sein (siehe dazu ebenfalls DE-A 2 940 024 und DE-A 3 007 934).

Als Verzweigungsmittel können beispielsweise 3- oder mehrfunktionelle Carbonsäurechloride, wie Trimesinsäuretrichlorid, Cyanursäuretrichlorid, 3,3',4,4'-Benzophe-

nontetracarbonsäuretetrachlorid, 1,4,5,8-Napthalintetracarbonsäuretetrachlorid oder Pyromellithsäuretetrachlorid, in Mengen von 0,01 bis 1,0 Mol-% (bezogen auf eingesetzte Dicarbonsäuredichloride) oder 3- oder mehrfunktionelle Phenole, wie Phloroglucin, 4,6-Dimethyl-2,4,6-tri-(4-hydroxyphenyl)-hepten-2,4,4-Dimethyl-2,4,6-tri-(4-hydroxyphenyl)-heptan, 1,3,5-Tri-(4-hydroxyphenyl)-benzol, 1,1,1-Tri-(4-hydroxyphenyl)-ethan, Tri-(4-hydroxyphenyl)-phenylmethan, 2,2-Bis[4,4-bis(4-hydroxyphenyl)-cyclohexyl]-propan, 2,4-Bis(4-hydroxyphenyl-isopropyl)-phenol, Tetra-(4-hydroxyphenyl)-methan, 2,6-Bis(2-hydroxy-5-methyl-benzyl)-4-methyl-phenol, 2-(4-Hydroxyphenyl)-2-(2,4-dihydroxyphenyl)-propan, Tetra-(4-[4-hydroxyphenyl-isopropyl]-phenoxy)-methan, 1,4-Bis[4,4'-dihydroxytri-phenyl]-methyl]-benzol, in Mengen von 0,01 bis 1,0 Mol-%, bezogen auf eingesetzte Diphenole, verwendet werden. Phenolische Verzweigungsmittel können mit den Diphenolen vorgelegt, Säurechlorid-Verzweigungsmittel können zusammen mit den Säuredichloriden eingetragen werden.

In den thermoplastischen, aromatischen Polyestercarbonaten kann der Anteil an Carbonatstruktureinheiten beliebig variieren. Vorzugsweise beträgt der Anteil an Carbonatgruppen bis zu 100 Mol-%, insbesondere bis zu 80 Mol-%, besonders bevorzugt bis zu 50 Mol-%, bezogen auf die Summe an Estergruppen und Carbonatgruppen. Sowohl der Ester- als auch der Carbonatanteil der aromatischen Polyestercarbonate kann in Form von Blöcken oder statistisch verteilt im Polykondensat vorliegen.

Die relative Lösungsviskosität ( $\eta_{rel}$ ) der aromatischen Polycarbonate und aromatischen Polyestercarbonate liegt im Bereich 1,18 bis 1,4, vorzugsweise 1,22 bis 1,3 (gemessen an Lösungen von 0,5 g Polycarbonat oder Polyestercarbonat in 100 ml Methylenchlorid-Lösung bei 25°C).

Die thermoplastischen, aromatischen Polycarbonate und Polyestercarbonate können allein oder im beliebigen Gemisch untereinander eingesetzt werden.

**Komponente B**

Das kautschukmodifizierte Pfropfpolymerisat B umfasst ein statistisches (Co)polymerisat aus Monomeren gemäß B.1.1 und/oder B.1.2, sowie einem mit dem statistischen (Co)polymerisat aus B.1.1 und/oder B.1.2 gepfropften Kautschuk B.2, wobei die Herstellung von B in bekannter Weise nach einem Masse- oder Lösungs- oder Masse-Suspensions-Polymerisationsverfahren erfolgt, wie z.B. in den US-A-3 243 481, US-A-3 509 237, US-A-3 660 535, US-A-4 221 833 und US-A-4 239 863 beschrieben.

Beispiele für Monomere B.1.1 sind Styrol,  $\alpha$ -Methylstyrol, halogen- oder alkylkernsubstituierte Styrole wie p-Methylstyrol, p-Chlorstyrol, (Meth)acrylsäure-C<sub>1</sub>-C<sub>8</sub>-alkylester wie Methylmethacrylat, n-Butylacrylat und t-Butylacrylat. Beispiele für Monomere B.1.2 sind ungesättigte Nitrile wie Acrylnitril, Methacrylnitril, (Meth)acrylsäure-C<sub>1</sub>-C<sub>8</sub>-alkylester wie Methylmethacrylat, n-Butylacrylat, t-Butylacrylat, Derivate (wie Anhydride und Imide) ungesättigter Carbonsäuren wie Maleinsäureanhydrid und N-Phenyl-maleinimid oder Mischungen davon.

Bevorzugte Monomere B.1.1 sind Styrol,  $\alpha$ -Methylstyrol und/oder Methylmethacrylat, bevorzugte Monomere B.1.2 sind Acrylnitril, Maleinsäureanhydrid und/oder Methylmethacrylat.

Besonders bevorzugte Monomere sind B.1.1 Styrol und B.1.2 Acrylnitril.

Für die kautschukmodifizierten Pfropfpolymerisate B geeignete Kautschuke B.2 sind beispielsweise Dienkautschuke, EP(D)M-Kautschuke, also solche auf Basis Ethylen/Propylen und gegebenenfalls Dien, Acrylat-, Polyurethan-, Silikon-, Chloropren- und Ethylen/Vinylacetat-Kautschuke.

Bevorzugte Kautschuke B.2 sind Dienkautschuke (z.B. auf Basis Butadien, Isopren etc.) oder Gemische von Dienkautschuken oder Copolymerisate von Dienkautschu-

ken oder deren Gemischen mit weiteren copolymerisierbaren Monomeren (z.B. gemäß B.1.1 und B.1.2), mit der Maßgabe, dass die Glasübergangstemperatur der Komponente B.2 unterhalb 10°C, vorzugsweise unterhalb -10°C liegt. Besonders bevorzugt wird reiner Polybutadienkautschuk.

5

Die Komponente B kann, falls erforderlich und wenn dadurch die Kautschukeigenschaften der Komponente B.2 nicht beeinträchtigt werden, zusätzlich noch geringe Mengen, üblicherweise weniger als 5 Gew.-%, vorzugsweise weniger als 2 Gew.-%, bezogen auf B.2, vernetzend wirkender ethylenisch ungesättigter Monomeren enthalten. Beispiele für solche vernetzend wirkenden Monomere sind Alkylendiol-di(meth)-acrylate, Polyester-di(meth)-acrylate, Divinylbenzol, Trivinylbenzol, Triallylcyanurat, Allyl(meth)-acrylat, Diallylmaleat und Diallylfumarat.

10

15

Das kautschukmodifizierte Pfropfpolymerisat B wird erhalten durch Pfropfpolymerisation von 50 bis 99, bevorzugt 65 bis 98, besonders bevorzugt 75 bis 95 Gew.-Teilen eines Gemischs aus 50 bis 99, bevorzugt 60 bis 95 Gew.-Teilen Monomeren gemäß B.1.1 und 1 bis 50, bevorzugt 5 bis 40 Gew.-Teilen Monomeren gemäß B.1.2 in Gegenwart von 1 bis 50, vorzugsweise 2 bis 35, besonders bevorzugt 5 bis 25 Gew.-Teilen der Kautschukkomponente B.2, wobei die Pfropfpolymerisation nach einem Masse- oder Lösungs- oder Masse-Suspensions-Polymerisationsverfahren durchgeführt wird.

20

25

30

Wesentlich bei der Herstellung der kautschukmodifizierten Pfropfpolymerisate B ist, dass die Kautschukkomponente B.2 vor der Pfropfpolymerisation im Gemisch der Monomeren B.1.1 und/oder B.1.2 in gelöster Form vorliegt. Die Kautschukkomponente B.2 darf also weder so stark vernetzt sein, dass eine Lösung in B.1.1 und/oder B.1.2 unmöglich wird, noch darf B.2 zu Beginn der Pfropfpolymerisation bereits in Form diskreter Teilchen vorliegen. Die für die Produkteigenschaften von B wichtige Teilchenmorphologie und zunehmende Vernetzung von B.2 bildet sich erst im Verlauf der Pfropfpolymerisation aus (siehe hierzu beispielsweise Ullmann, Encyclopädie der technischen Chemie, Band 19, S. 284 ff., 4. Auflage 1980).

Das statistische Copolymerisat aus B.1.1 und B.1.2 liegt üblicherweise im Polymerisat B zu einem Teil auf dem Kautschuk B.2 auf oder eingetropft vor, wobei dieses Pffropfmischpolymerisat diskrete Teilchen im Polymerisat B ausbildet. Der Anteil des auf- oder eingepfropften Copolymerisats aus B.1.1 und B.1.2 am gesamten Copolymerisat aus B.1.1 und B.1.2 - also die Pffropfausbeute (= Gewichtsverhältnis der tatsächlich gepfropften Pffropfmonomeren zu den insgesamt verwendeten Pffropfmonomeren x 100, angegeben in %) - sollte dabei 2 bis 40 %, vorzugsweise 3 bis 30 %, besonders bevorzugt 4 bis 20 % betragen.

10

Der mittlere Teilchendurchmesser der resultierenden gepfropften Kautschukteilchen (ermittelt durch Auszählung an elektronenmikroskopischen Aufnahmen) liegt im Bereich von 0,5 bis 5  $\mu\text{m}$ , vorzugsweise 0,8 bis 2,5  $\mu\text{m}$ .

15

Neben der über Masse-Polymerisation hergestellten Pffropfpolymerisate können die erfindungsgemäßen Formmassen auch über Emulsionspolymerisation hergestelltes Pffropfpolymerisat enthalten. Die Beschreibung der Pffropfpolymerisate entspricht vorzugsweise derjenigen der über Massepolymerisation hergestellten, sind jedoch mittels Emulsionspolymerisation hergestellt.

20

Der mittlere Teilchendurchmesser ( $d_{50}$ -Wert) der Pffropfgrundlage im Emulsionspffropfpolymerisat beträgt im allgemeinen 0,05 bis 5  $\mu\text{m}$ , vorzugsweise 0,10 bis 0,5  $\mu\text{m}$ , besonders bevorzugt 0,20 bis 0,40  $\mu\text{m}$ . Der Gelanteil der Pffropfgrundlage beträgt mindestens 30 Gew.-%, vorzugsweise mindestens 40 Gew.-%.

25

Das ABS-Pffropfpolymer ist besonders bevorzugtes "Emulsions-Pffropfpolymer".

30

Das Gewichtsverhältnis von mittels Massepolymerisation hergestelltes Pffropfpolymer gemäß Komponente B der vorliegenden Erfindung zu dem mittels Emulsionspolymerisation hergestellten Pffropfpolymer beträgt 100:0 bis 50:50, vorzugsweise 80:20 bis 60:40.

**Komponente C**

Als Komponente C werden Polyalkylennaphthalate eingesetzt (vgl. z.B. EP-A-0846729). Hierbei handelt es sich um einen Polyester, dessen Eigenschaften ähnlich denen der Polyalkylenterephthalate sind.

Die Polyalkylennaphthalate der Komponente C können sowohl Homo- als auch Copolymere sein. Bei den Polyalkylennaphthalaten der Komponente C handelt es sich um Reaktionsprodukte der ggf. substituierten Naphtalindicarbonsäure oder ihren reaktionsfähigen Derivaten, wie Dimethylestern oder Anhydriden, mit aliphatischen, cycloaliphatischen oder araliphatischen Diolen sowie um Mischungen dieser Reaktionsprodukte. Beispiele für Substituenten an der Naphtalindicarbonsäure sind Alkylgruppen mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, Alkylarylgruppen sowie Halogene.

Die Polyalkylennaphthalate können neben Naphthalindicarbonsäure bis zu 98 Mol-%, vorzugsweise bis zu 70 Mol-%, Reste anderer aromatischer oder cycloaliphatischer Dicarbonsäuren mit 8 bis 14 C-Atomen oder aliphatischer Dicarbonsäuren mit 4 bis 12 C-Atomen, wie z.B. Reste von Phthalsäure, Isophthalsäure, Terephthalsäure, 4,4'-Diphenyldicarbonsäure, Bernsteinsäure, Adipinsäure, Sebacinsäure, Azelainsäure, Cyclohexandiessigsäure enthalten.

Die bevorzugten Polyalkylennaphthalate können neben Ethylenglykol- bzw. Butandiol-1,4-Resten bis zu 20 Mol-%, vorzugsweise bis zu 10 Mol-%, andere aliphatische Diole mit 2 bis 12 C-Atomen oder cycloaliphatische Diole mit 6 bis 21 C-Atomen enthalten, z.B. Ethandiol, Butandiol, Propandiol-1,3, 2-Ethylpropandiol-1,3, Neopentylglykol, Pentandiol-1,5, Hexandiol-1,6, Cyclohexan-dimethanol-1,4, 3-Ethylpentandiol-2,4, 2-Methylpentandiol-2,4, 2,2,4-Trimethylpentandiol-1,3, 2-Ethylhexandiol-1,3, 2,2-Diethylpropandiol-1,3, Hexandiol-2,5, 1,4-Di-( $\beta$ -hydroxyethoxy)-benzol, 2,2-Bis-(4-hydroxycyclohexyl)-propan, 2,4-Dihydroxy-1,1,3,3-tetramethyl-

cyclobutan, 2,2-Bis-(4- $\beta$ -hydroxyethoxy-phenyl)-propan und 2,2-Bis-(4-hydroxy-propoxyphenyl)-propan (DE-A 2 407 674, 2 407 776, 2 715 932).

5 Die Polyalkylennaphthalate können durch Einbau relativ kleiner Mengen 3- oder 4-wertiger Alkohole oder 3- oder 4-basischer Carbonsäuren, z.B. gemäß DE-A 1 900 270 und US-A 3 692 744, verzweigt werden. Beispiele bevorzugter Verzweigungsmittel sind Trimesinsäure, Trimellithsäure, Trimethylolethan und -propan und Pentaerythrit.

10 Besonders bevorzugt sind Polyalkylennaphthalate, die allein aus Naphthalindicarbonsäure und deren reaktionsfähigen Derivaten (z.B. deren Dialkylestern) und Ethylen-glykol und/oder Butandiol-1,4 hergestellt worden sind, und Mischungen dieser Poly-alkylennaphthalate.

15 Mischungen von Polyalkylennaphthalaten enthalten 1 bis 50 Gew.-%, vorzugsweise 1 bis 30 Gew.-%, Polyethylen-naphthalat und 50 bis 99 Gew.-%, vorzugsweise 70 bis 99 Gew.-%, Polybutylen-naphthalat.

20 Die vorzugsweise verwendeten Polyalkylennaphthalate besitzen im allgemeinen eine Grenzviskosität von 0,4 bis 1,5 dl/g, vorzugsweise 0,5 bis 1,2 dl/g, gemessen in Phenol/o-Dichlorbenzol (1:1 Gewichtsteile) bei 25°C im Ubbelohde-Viskosimeter.

Die Polyalkylennaphthalate lassen sich nach bekannten Methoden herstellen.

## 25 Komponente D1

Erfindungsgemäß einsetzbare Vinyl-(Co)polymerisate gemäß Komponente D1 sind solche aus wenigstens einem Monomeren aus der Reihe: Styrol,  $\alpha$ -Methylstyrol und/oder kernsubstituierten Styrolen, C<sub>1</sub>-C<sub>8</sub>-Alkylmethacrylat, C<sub>1</sub>-C<sub>8</sub>-Alkylacrylat  
30 (D.1.1) mit wenigstens einem Monomeren aus der Reihe: Acrylnitril, Methacrylnitril,

C<sub>1</sub>-C<sub>8</sub>-Alkylmethacrylat, C<sub>1</sub>-C<sub>8</sub>-Alkylacrylat, Maleinsäureanhydrid und/oder N-substituierte Maleinimide (D.1.2).

5 C<sub>1</sub>-C<sub>8</sub>-Alkylacrylate bzw. C<sub>1</sub>-C<sub>8</sub>-Alkylmethacrylate sind Ester der Acrylsäure bzw. Methacrylsäure und einwertiger Alkohole mit 1 bis 8 C-Atomen. Besonders bevorzugt sind Methacrylsäuremethylester, -ethylester und -propylester. Als besonders bevorzugter Methacrylsäureester wird Methylmethacrylat genannt.

10 Thermoplastische (Co)polymerisate mit einer Zusammensetzung gemäß Komponente D1 können bei der Pffropfpolymerisation zur Herstellung der Komponente B als Nebenprodukt entstehen, besonders dann, wenn große Mengen Monomere auf kleine Mengen Kautschuk gepfropft werden. Die erfindungsgemäß einzusetzende Menge an (Co)polymerisat D1 bezieht diese Nebenprodukte der Pffropfpolymerisation nicht mit ein.

15

Die (Co)polymerisate gemäß Komponente D1 sind harzartig, thermoplastisch und kautschukfrei.

20 Die thermoplastischen (Co)polymerisate D1 enthalten 50 bis 99, vorzugsweise 60 bis 95 Gew.-Teile D.1.1 und 50 bis 2, vorzugsweise 40 bis 5 Gew.-Teile D.1.2.

25 Besonders bevorzugte (Co)polymerisate D1 sind solche aus Styrol mit Acrylnitril und gegebenenfalls mit Methylmethacrylat, aus  $\alpha$ -Methylstyrol mit Acrylnitril und gegebenenfalls mit Methylmethacrylat, oder aus Styrol und  $\alpha$ -Methylstyrol mit Acrylnitril und gegebenenfalls mit Methylmethacrylat.

30 Die Styrol-Acrylnitril-Copolymerisate gemäß Komponente D1 sind bekannt und lassen sich durch radikalische Polymerisation, insbesondere durch Emulsions-, Suspensions-, Lösungs- oder Massepolymerisation herstellen. Die Copolymerisate gemäß Komponente D1 besitzen vorzugsweise Molekulargewichte  $\bar{M}_w$  (Gewichts-



mittel, ermittelt durch Lichtstreuung oder Sedimentation) zwischen 15 000 und 200 000.

5 Besonders bevorzugte erfindungsgemäße Copolymerisate D1 sind auch statistisch aufgebaute Copolymerisate aus Styrol und Maleinsäureanhydrid, die durch eine kontinuierliche Masse oder Lösungspolymerisation bei unvollständigen Umsätzen aus dem entsprechenden Monomeren hergestellt werden können.

10 Die Anteile der beiden Komponenten der erfindungsgemäß geeigneten statistisch aufgebauten Styrol-Maleinsäureanhydrid-Copolymeren können innerhalb weiter Grenzen variiert werden. Der bevorzugte Gehalt an Maleinsäureanhydrid liegt bei 5 bis 25 Gew.-%.

15 Die Molekulargewichte (Zahlenmittel  $\bar{M}_n$ ) der erfindungsgemäß geeigneten statistisch aufgebauten Styrol-Maleinsäureanhydrid-Copolymeren gemäß Komponente B können über einen weiten Bereich variieren. Bevorzugt ist der Bereich von 60 000 bis 200 000. Bevorzugt ist für diese Produkte eine Grenzviskosität von 0,3 bis 0,9 (gemessen in Dimethylformamid bei 25°C; siehe hierzu Hoffmann, Krömer, Kuhn, Polymeranalytik I, Stuttgart 1977, Seite 316 ff.).

20 Anstelle von Styrol können die Vinyl(Co)polymerisate D1 auch kernsubstituierte Styrole wie p-Methylstyrol, Vinyltoluol, 2,4-Dimethylstyrol und andere substituierte Styrole wie  $\alpha$ -Methylstyrol, die gegebenenfalls substituiert sein können, enthalten.

## 25 Komponente D2

Die Polyalkylenterephthalate der Komponente D2 sind Reaktionsprodukte aus aromatischen Dicarbonsäuren oder ihren reaktionsfähigen Derivaten, wie Dimethylestern oder Anhydriden, und aliphatischen, cycloaliphatischen oder araliphatischen  
30 Diolen sowie Mischungen dieser Reaktionsprodukte.

Bevorzugte Polyalkylenterephthalate enthalten mindestens 80 Gew.-%, vorzugsweise mindestens 90 Gew.-%, bezogen auf die Dicarbonsäurekomponente Terephthalsäurereste und mindestens 80 Gew.-%, vorzugsweise mindestens 90 Mol.-%, bezogen auf die Diolkomponente Ethylenglykol- und/oder Butandiol-1,4-Reste.

5

Die bevorzugten Polyalkylenterephthalate können neben Terephthalsäureresten bis zu 20 Mol.-%, vorzugsweise bis zu 10 Mol.-%, Reste anderer aromatischer oder cycloaliphatischer Dicarbonsäuren mit 8 bis 14 C-Atomen oder aliphatischer Dicarbonsäuren mit 4 bis 12 C-Atomen enthalten, wie z.B. Reste von Phthalsäure, Isophthalsäure, 4,4'-Diphenyldicarbonsäure, Bernsteinsäure, Adipinsäure, Sebacinsäure, Azelainsäure, Cyclohexan-diessigsäure.

10

15

Die bevorzugten Polyalkylenterephthalate können neben Ethylenglykol- bzw. Butandiol-1,4-Resten bis zu 20 Mol.-%, vorzugsweise bis zu 10 Mol.-%, andere aliphatische Diole mit 3 bis 12 C-Atomen oder cycloaliphahtische Diole mit 6 bis 21 C-Atomen enthalten, z.B. Reste von Propandiol-1,3, 2-Ethylpropandiol-1,3, Neopentylglykol, Pentandiol-1,5, Hexandiol-1,6, Cyclohexan-dimethanol-1,4, 3-Ethylpentandiol-2,4, 2-Methylpentandiol-2,4, 2,2,4-Trimethylpentandiol-1,3, 2-Ethylhexandiol-1,3, 2,2-Diethylpropandiol-1,3, Hexandiol-2,5, 1,4-Di-( $\beta$ -hydroxyethoxy)-benzol, 2,2-Bis-(4-hydroxycyclohexyl)-propan, 2,4-Dihydroxy-1,1,3,3-tetramethyl-cyclobutan, 2,2-Bis-(4- $\beta$ -hydroxyethoxy-phenyl)-propan und 2,2-Bis-(4-hydroxypropoxyphenyl)-propan (DE-A 2 407 674, 2 407 776, 2 715 932).

20

25

Die Polyalkylenterephthalate können durch Einbau relativ kleiner Mengen 3- oder 4-wertiger Alkohole oder 3- oder 4-basischer Carbonsäuren, z.B. gemäß DE-A 1 900 270 und US-PS 3 692 744, verzweigt werden. Beispiele bevorzugter Verzweigungsmittel sind Trimesinsäure, Trimellithsäure, Trimethylolethan und -propan und Pentaerythrit.

30

Besonders bevorzugt sind Polyalkylenterephthalate, die allein aus Terephthalsäure und deren reaktionsfähigen Derivaten (z.B. deren Dialkylestern) und Ethylenglykol

und/oder Butandiol-1,4 hergestellt worden sind, und Mischungen dieser Polyalkylenterephthalate.

5 Mischungen von Polyalkylenterephthalaten enthalten 1 bis 50 Gew.-%, vorzugsweise 1 bis 30 Gew.-%, Polyethylenterephthalat und 50 bis 99 Gew.-%, vorzugsweise 70 bis 99 Gew.-%, Polybutylenterephthalat.

10 Die vorzugsweise verwendeten Polyalkylenterephthalate besitzen im allgemeinen eine Grenzviskosität von 0,4 bis 1,5 dl/g, vorzugsweise 0,5 bis 1,2 dl/g, gemessen in Phenol/o-Dichlorbenzol (1:1 Gewichtsteile) bei 25°C im Ubbelohde-Viskosimeter.

Die Polyalkylenterephthalate lassen sich nach bekannten Methoden herstellen (s. z.B. Kunststoff-Handbuch, Band VIII, S. 695 ff., Carl-Hanser-Verlag, München 1973).

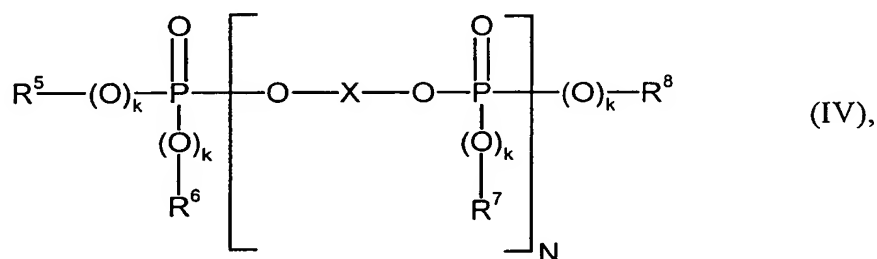
#### 15 Additive

Die erfindungsgemäßen Polymerblends können übliche Additive, wie Flamm-  
schutzmittel, Anti-Dripping-Mittel, feinstteilige anorganische Verbindungen, Gleit-  
und Entformungsmittel, Nukleierungsmittel, Antistatika, Stabilisatoren, Füll- und  
20 Verstärkungsstoffe sowie Farbstoffe und Pigmente enthalten.

Die erfindungsgemäßen Polymerblends können im allgemeinen 0,01 bis 20 Gew.-%, bezogen auf die Gesamt-Masse, Flammenschutzmittel enthalten. Beispielfhaft werden als Flammenschutzmittel organische Halogenverbindungen wie Decabrombisphenyl-  
25 ether, Tetrabrombisphenol, anorganische Halogenverbindungen wie Ammoniumbromid, Stickstoffverbindungen, wie Melamin, Melaminformaldehyd-Harze, anorganische Hydroxidverbindungen wie Mg- Al-hydroxid, anorganische Verbindungen wie Aluminiumoxide, Titandioxide, Antimonoxide, Barium-metaborat, Hydroxoantimonat, Zirkon-oxid, Zirkon-hydroxid, Molybdenoxid, Ammoniummolybdat,  
30 Zinnborat, Ammoniumborat, Bariummetaborat und Zinnoxid sowie Siloxanverbindungen genannt.

Als Flammschutzverbindungen können ferner Phosphorverbindungen, wie sie in EP-A 0363608, EP-A 0345522 oder EP-A 0640655 beschrieben sind, eingesetzt werden.

- 5 Solche Phosphorverbindungen sind beispielsweise Phosphor-Verbindungen der Formel (IV)



in welcher

10

$\text{R}^5$ ,  $\text{R}^6$ ,  $\text{R}^7$  und  $\text{R}^8$ , unabhängig voneinander jeweils gegebenenfalls halogeniertes  $\text{C}_1$ - $\text{C}_8$ -Alkyl, jeweils gegebenenfalls durch Alkyl, vorzugsweise  $\text{C}_1$ - $\text{C}_4$ -Alkyl, und/oder Halogen, vorzugsweise Chlor, Brom, substituiertes  $\text{C}_5$ - $\text{C}_6$ -Cycloalkyl,  $\text{C}_6$ - $\text{C}_{30}$ -Aryl oder  $\text{C}_7$ - $\text{C}_{12}$ -Aralkyl bedeuten.

15

Bevorzugt stehen  $\text{R}^5$ ,  $\text{R}^6$ ,  $\text{R}^7$  und  $\text{R}^8$  unabhängig voneinander für  $\text{C}_1$ - $\text{C}_4$ -Alkyl, Phenyl, Naphthyl oder Phenyl- $\text{C}_1$ - $\text{C}_4$ -alkyl. Die aromatischen Gruppen  $\text{R}^5$ ,  $\text{R}^6$ ,  $\text{R}^7$  und  $\text{R}^8$  können ihrerseits mit Halogen- und/oder Alkylgruppen, vorzugsweise Chlor, Brom und/oder  $\text{C}_1$ - $\text{C}_4$ -Alkyl substituiert sein. Besonders bevorzugte Aryl-Reste sind Kresyl, Phenyl, Xylenyl, Propylphenyl oder Butylphenyl sowie die entsprechenden bromierten und chlorierten Derivate davon.

20

X in der Formel (IV) bedeutet einen ein- oder mehrkernigen aromatischen Rest mit 6 bis 30 C-Atomen. Dieser leitet sich von Diphenolen ab wie z.B. Diphenylphenol, Bisphenol A, Resorcin oder Hydrochinon oder deren chlorierten oder bromierten Derivaten.

25

k in der Formel (IV) kann, unabhängig voneinander, 0 oder 1 sein, vorzugsweise ist n gleich 1.

5 N steht für Werte von 0 bis 30, vorzugsweise für 0 bzw. einen durchschnittlichen Wert von 0,3 bis 20, besonders bevorzugt 0,5 bis 10, insbesondere 0,5 bis 6.

10 Mischungen aus Phosphorverbindungen der Formel (IV) enthalten vorzugsweise 10 bis 90 Gew.-%, vorzugsweise 12 bis 40 Gew.-%, wenigstens einer Monophosphorverbindung der Formel (IV) und wenigstens einer oligomeren Phosphorverbindung beziehungsweise eines Gemisches von oligomeren Phosphorverbindungen in Mengen von 10 bis 90 Gew.-%, vorzugsweise 60 bis 88 Gew.-%, bezogen auf die Gesamtmenge an Phosphorverbindungen, eingesetzt.

15

Monophosphorverbindungen der Formel (IV) sind insbesondere Tributylphosphat, Tris-(2-chlorethyl)-phosphat, Tris-(2,3-dibrompropyl)-phosphat, Triphenylphosphat, Trikresylphosphat, Diphenylkresylphosphat, Diphenyloctylphosphat, Diphenyl-2-ethylkresylphosphat, Tri-(isopropylphenyl)-phosphat, halogensubstituierte Arylphosphate, Methylphosphonsäuredimethylester, Methylphosphonsäurediphenylester, Phenylphosphonsäurediethylester, Triphenylphosphinoxid oder Trikresylphosphinoxid.

20

Die Mischungen aus Monomeren und oligomeren Phosphorverbindungen der Formel (IV) weisen durchschnittliche N-Werte von 0,3 bis 20, bevorzugt 0,5 bis 10, insbesondere von 0,5 bis 6 auf.

25

Die Phosphorverbindungen gemäß Formel (IV) sind bekannt (vgl. z.B. EP-A 0363608, EP-A 0640655, EP-A 0542522) oder lassen sich nach bekannten Methoden in analoger Weise herstellen (z.B. Ullmanns Enzyklopädie der technischen Chemie,

30

Bd. 18, S. 301 ff. 1979; Houben-Weyl, Methoden der organischen Chemie, Bd. 12/1, S. 43; Beilstein Bd. 6, S. 177).

Die erfindungsgemäßen Polymerblends können gegebenenfalls von Verbindungen der Formel (IV) verschiedene Flammenschutzmittel in einer Menge bis zu 20 Gew.-  
5 Teilen enthalten. Bevorzugt sind synergistisch wirkende Flammenschutzmittel. Beispielfhaft werden als weitere Flammenschutzmittel organische Halogenverbindungen wie Decabrombisphenylether, Tetrabrombisphenol, anorganische Halogenverbindungen wie Ammoniumbromid, Stickstoffverbindungen, wie Melamin, Melaminformaldehyd-Harze oder Siloxanverbindungen genannt. Die erfindungsgemäßen  
10 Polymerblends können gegebenenfalls von den anorganischen Verbindungen abweichende anorganische Substanzen enthalten wie beispielsweise anorganische Hydroxidverbindungen wie Mg-, Al-hydroxid, anorganische Verbindungen wie Aluminiumoxid, Antimonoxide, Bariummetaborat, Hydroxoantimonat, Zirkoniumoxid, Zirkonhydroxid, Molybdänoxid, Ammoniummolybdat, Zinkborat, Ammoniumborat,  
15 Bariummetaborat und Zinnoxid.

Ferner können die erfindungsgemäßen thermoplastischen Polymerblends feinstteilige anorganische Verbindungen enthalten, die sich günstig auf die Flammsechutz-  
20 eigenschaften der erfindungsgemäßen Polymerblends auswirken. Diese anorganischen Verbindungen umfassen Verbindungen eines oder mehrerer Metalle der 1. bis 5. Hauptgruppe oder der 1. bis 8. Nebengruppe des Periodensystems, bevorzugt der 2. bis 5. Hauptgruppe oder der 4. bis 8. Nebengruppe, besonders bevorzugt der 3. bis 5. Hauptgruppe oder der 4. bis 8. Nebengruppe mit den Elementen Sauerstoff,  
25 Schwefel, Bor, Phosphor, Kohlenstoff, Stickstoff, Wasserstoff und/oder Silicium.

Bevorzugte Verbindungen sind beispielsweise Oxide, Hydroxide, wasserhaltige Oxide, Sulfate, Sulfite, Sulfide, Carbonate, Carbide, Nitrate, Nitrite, Nitride, Borate, Silikate, Phosphate, Hydride, Phosphite oder Phosphonate.

Bevorzugte feinstteilige anorganischen Verbindungen sind beispielsweise TiN, TiO<sub>2</sub>, SnO<sub>2</sub>, WC, ZnO, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, AlO(OH), ZrO<sub>2</sub>, Sb<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, SiO<sub>2</sub>, Eisenoxide, NaSO<sub>4</sub>, BaSO<sub>4</sub>, Vanadiumoxide, Zinkborat, Silicate wie Al-Silikate, Mg-Silikate, ein, zwei, drei-dimensionale Silikate, Mischungen und dotierte Verbindungen sind ebenfalls verwendbar. Des Weiteren können diese nanoskaligen Partikel mit organischen Molekülen oberflächenmodifiziert sein, um eine bessere Verträglichkeit mit den Polymeren zu erzielen. Auf diese Weise lassen sich hydrophobe oder hydrophile Oberflächen erzeugen.

Die durchschnittlichen Teilchendurchmesser sind kleiner gleich 200 nm, bevorzugt kleiner gleich 150 nm, insbesondere 1 bis 100 nm.

Teilchengröße und Teilchendurchmesser bedeutet immer den mittleren Teilchendurchmesser d<sub>50</sub>, ermittelt durch Ultrazentrifugmessungen nach W. Scholtan et al. Kolloid-Z. und Z. Polymere 250 (1972), S. 782 bis 796.

Die anorganischen Verbindungen können als Pulver, Pasten, Sole, Dispersionen oder Suspensionen vorliegen. Durch Ausfällen können aus Dispersionen, Sole oder Suspensionen Pulver erhalten werden.

Die Pulver können nach üblichen Verfahren in die thermoplastischen Kunststoffe eingearbeitet werden, beispielsweise durch direktes Kneten oder Extrudieren der Bestandteile der Formmasse und den feinstteiligen anorganischen Pulvern. Bevorzugte Verfahren stellen die Herstellung eines Masterbatch, z.B. in Flammschutzadditiven, anderen Additiven, Monomeren, Lösungsmitteln, in Komponente A oder die Cofällung von Dispersionen der Komponenten B oder C mit Dispersionen, Suspensionen, Pasten oder Solen der feinstteiligen anorganischen Materialien dar.

Die thermoplastischen Polymerblends können anorganische Füll- und Verstärkungsmaterialien wie Glasfasern, gegebenenfalls geschnitten oder gemahlen, Glasperlen, Glaskugeln, blättchenförmiges Verstärkungsmaterial, wie Kaolin, Talk, Glimmer,

Silicate, Quarz, Talkum, Titandioxid, Wollastonit, Mika, Kohlefasern oder deren Mischung enthalten. Vorzugsweise werden als Verstärkungsmaterial geschnittene oder gemahlene Glasfasern eingesetzt. Bevorzugte Füllstoffe, die auch verstärkend wirken können sind Glaskugeln, Glimmer, Silikate, Quarz, Talkum, Titandioxid, Wollastonit

Die gefüllten bzw. verstärkten Polymerblends können bis zu 60, vorzugsweise 10 bis 40 Gew.-%, bezogen auf die gefüllte bzw. verstärkte Formmasse, Füll- und/oder Verstärkungsstoffe enthalten.

Weiterhin können fluorierte Polyolefine zugesetzt werden. Die fluorierten Polyolefine sind hochmolekular und besitzen Glasübergangstemperaturen von über  $-30^{\circ}\text{C}$ , in der Regel von über  $100^{\circ}\text{C}$ , Fluorgehalte, vorzugsweise von 65 bis 76, insbesondere von 70 bis 76 Gew.-%, mittlere Teilchendurchmesser  $d_{50}$  von 0,05 bis 1 000  $\mu\text{m}$ , vorzugsweise 0,08 bis 20  $\mu\text{m}$ . Im allgemeinen haben die fluorierten Polyolefine E eine Dichte von 1,2 bis 2,3  $\text{g}/\text{cm}^3$ .

Bevorzugte fluorierte Polyolefine sind Polytetrafluorethylen, Polyvinylidenfluorid, Tetrafluorethylen/Hexafluorpropylen- und Ethylen/Tetrafluorethylen-Copolymerisate.

Die fluorierten Polyolefine sind bekannt (vgl. EP-A 0640655).

Erfindungsgemäß werden die fluorierten Polyolefine E in Form spezieller Zubereitungen eingesetzt:

als koagulierte Mischung mit mindestens einer der Komponenten A bis C, wobei das fluorierte Polyolefin E bzw. Polyolefingemisch als Emulsion mit mindestens einer Emulsion der Komponenten A bis C gemischt und anschließend koaguliert wird

oder



als Präcompound mit mindestens einer der Komponenten A bis C, wobei die fluorierten Polyolefine E als Pulver mit einem Pulver oder einem Granulat mindestens einer der Komponenten A bis C vermischt und in der Schmelze, im  
5 allgemeinen bei Temperaturen von 208°C bis 330°C in den üblichen Aggregaten wie Innenknetern, Extruder oder Doppelwellenschnecken, compoundiert wird.

Geeignete Tetrafluorethylenpolymerisat-Emulsionen sind handelsübliche Produkte und werden beispielsweise von der Firma DuPont als Teflon® 30 N angeboten.

10

Die Erfindung umfasst auch ein Verfahren zur Herstellung der Polymerblends.

15

Die erfindungsgemäßen Polymerblends, enthaltend Komponenten A bis E, werden hergestellt, indem man die jeweiligen Bestandteile in bekannter Weise vermischt und bei Temperaturen von 200°C bis 300°C in üblichen Aggregaten wie Innenknetern, Extrudern und Doppelwellenschnecken schmelzcompoundiert oder schmelzextru-  
diert, wobei die fluorierten Polyolefine vorzugsweise in Form der bereits erwähnten koagulierten Mischung eingesetzt werden.

20

Die Vermischung der einzelnen Bestandteile kann in bekannter Weise sowohl sukzessive als auch simultan erfolgen, und zwar sowohl bei etwa 20°C (Raumtemperatur) als auch bei höherer Temperatur.

25

Die Polymerblends der vorliegenden Erfindung können zur Herstellung von Formkörpern jeder Art verwendet werden. Insbesondere können Formkörpern durch Spritzguss hergestellt werden. Beispiele für herstellbare Formkörper sind: Gehäuse-  
teile jeder Art, z.B. für Haushaltsgeräte, wie Saftpressen, Kaffeemaschinen, Mixer, für Büromaschinen, wie Computer, Drucker, Monitore oder Abdeckplatten für den Bausektor und Teile für den Kfz-Sektor. Sie werden außerdem auf dem Gebiet der  
30 Elektrotechnik eingesetzt, weil sie sehr gute elektrische Eigenschaften haben.

Besonders geeignet sind die Polymerblends zur Herstellung von dünnwandigen Formteilen (z.B. Datentechnik-Gehäuseteile), wo besonders hohe Ansprüche an Kerbschlagzähigkeit und Spannungsrissbeständigkeit der eingesetzten Kunststoffe gestellt werden.

Eine weitere Form der Verarbeitung ist die Herstellung von Formkörpern durch Blasformen oder durch Tiefziehen aus vorher hergestellten Platten oder Folien.

10 Im Folgenden wird die Erfindung anhand einiger Beispiele näher erläutert.

1. Definition der verwendeten Substanzen

Komponente	Bezeichnung
A1	Lineares Polycarbonat auf Basis Bisphenol A mit einer relativen Lösungsviskosität von 1,26 gemessen in $\text{CH}_2\text{Cl}_2$ als Lösungsmittel bei 25°C und in einer Konzentration von 0,5 g/100ml
A2	Lineares Polycarbonat auf Basis Bisphenol A mit einer relativen Lösungsviskosität von 1,32 gemessen in $\text{CH}_2\text{Cl}_2$ als Lösungsmittel bei 25°C und in einer Konzentration von 0,5 g/100ml
B1	Pfropfpolymerisat von 40 Gew.-Teilen eines Copolymerisats aus Styrol und Acrylnitril im Verhältnis von 73:27 auf 60 Gew.-Teile teilchenförmig vernetztem Polybutadienkautschuk (mittlerer Teilchendurchmesser $d_{50}=0,28 \mu\text{m}$ ), hergestellt durch Emulsionspolymerisation
B2	Pfropfpolymerisat von 50 Gew.-Teilen eines Copolymerisats aus Styrol und Acrylnitril im Verhältnis von 72:28 auf 50 Gew.-Teile einer Mischung im Verhältnis 1:1 aus einem a) teilchenförmig vernetzten Polybutadienkautschuk (mittlerer Teilchendurchmesser $d_{50}=0,4 \mu\text{m}$ ) sowie aus einem b) teilchenförmig vernetzten Polybutadienkautschuk (mittlerer Teilchendurchmesser $d_{50}=0,1 \mu\text{m}$ ), hergestellt durch Emulsionspolymerisation
C1	Polyethylenaphthalat mit einer Vicat B120 (ISO 306) Temperatur von 118°C und einer Schmelzvolumenrate (ISO 1133 270°C, 5kg) von 12,1 $\text{cm}^3/10 \text{ min}$
C2	Polyethylenaphthalat-co-terephthalat mit einer Vicat B120 (ISO 306) Temperatur von 114°C und einer Schmelzvolumenrate (ISO 1133, 270°C, 5kg) von 10,7 $\text{cm}^3/10 \text{ min}$
D1	Styrol/Acrylnitril-Copolymerisat mit einem Styrol/Acrylnitril-Verhältnis von 72:28 und einer Grenzviskosität von 0,55 dl/g (Messung in Dimethylformamid bei 20°C)

**Komponente****Bezeichnung**

D2	Polybutylenterephthalat mit einer Viskositätszahl J nach DIN 53 728/3 von 140 cm <sup>3</sup> /g und mit einer Vicat B120 (ISO 306) Temperatur von 170°C
E	Pentaeritrittettrastearat

Die Bestimmung der Zugfestigkeit erfolgt nach ISO 527.

Die Bestimmung der Reißdehnung erfolgt nach ISO 527.

Die Bestimmung der Schmelzvolumenrate erfolgt nach ISO 1133.

5

Der Rohton wurde visuell beurteilt. Ausgehend vom Vergleichsbeispiel als Kontrolle (Wert "0") wurde die Aufhellung (+, ++) der erfindungsgemäßen Beispiele beurteilt.

2. Tabellen

10

Tab. 1: Formmassen und ihre Eigenschaften

	Vergleich	Erfindungsgemäß 1	Erfindungsgemäß 2
A1 Gew.-Teile	70	65	65
B1 Gew.-Teile	13	13	13
C1 Gew.-Teile	-	5	-
C2 Gew.-Teile	-	-	5
D1 Gew.-Teile	17	17	17
E Gew.-Teile	0,5	0,5	0,5
Kerbschlagzähigkeit Izod 23°C kJ/m <sup>2</sup>	56	55	55
Kritische Temp. °C	<-30	<-30	<-30
Schmelzvolumenrate cm <sup>3</sup> /10 min.	8,6	10,7	13,3
Zugfestigkeit MPa	2180	2183	2187
Reißdehnung %	88	122	123
Rohton (visuelle Beurteilung)	0	+	+

Die erfindungsgemäßen Formmassen zeichnen sich durch eine günstige Eigenschaftskombination aus verbesserter Fließfähigkeit, mechanischen Eigenschaften und Rohton aus. Überraschenderweise werden durch die gegenüber dem Stand der Technik hinzugefügten Komponenten C1 bzw. C2 der Rohton deutlich verbessert, wobei im Gegensatz zu Farbpigmenten die mechanischen Eigenschaften sich zusätzlich noch verbessern. Auch nimmt die Fließfähigkeit, hier in Form der Schmelzvolumenrate, zu.

Tab. 2: Formmassen und ihre Eigenschaften

	Vergleich	Erf. 3	Erf. 4	Erf. 5	Erf. 6
A1 Gew. -Teile	60	60	60	60	60
B1 Gew.-Teile	20	20	20	20	20
C1 Gew.-Teile	-	20	10	-	-
C2 Gew.-Teile	-	-	-	20	10
D1 Gew.-Teile	20	-	10	-	10
E Gew.-Teile	0,5	0,5	0,5	0,5	0,5
Kerbschlagzähigkeit (Izod 23 °C) kJ/m <sup>2</sup>	56	51	59	59	55
Kritische Temp. °C	<-30	<-30	<-30	<-30	<-30
Vicat-Temp. VSTB 120 ISO306 °C	122	130	127	125	128
Reißdehnung %	115	115	117	116	117
Rohton (visuelle Beurteilung)	0	++	+	++	+

Die erfindungsgemäßen Formmassen zeichnen sich durch eine günstige Eigenschaftskombination mechanischer und thermischer Eigenschaften sowie des Rohtons aus. Überraschenderweise werden durch die gegenüber dem Stand der Technik hinzugefügten Komponenten C1 bzw. C2 der Rohton deutlich verbessert und zwar unter Erhalt bzw. Verbesserung der mechanischen Eigenschaften, wie Kerbschlagzähigkeit und Reißdehnung. Zusätzlich läßt sich eine für viele Anwendungen vorteilhafte Erhöhung der Vicat-Temperatur erzielen.

Tab. 3: Formmassen und ihre Eigenschaften

		Vergleich	Erfindungsgemäß 7
B2	Gew.-Teile	30	30
D1	Gew.-Teile	70	70
C2	Gew.-Teile	-	2
E	Gew.-Teile	0,5	0,5
Kerbschlagzähigkeit Izod 23°C kJ/m <sup>2</sup>		8	10
Schmelzvolumenrate cm <sup>3</sup> /10min.		26	25
Reißdehnung %		17	17
Rohton (visuelle Beurteilung)		0	+

Die erfindungsgemäßen Formmassen zeichnen sich durch eine günstige Eigenschaftskombination aus verbessertem Rohton und Fließfähigkeit bzw. mechanischen Eigenschaften aus. Überraschenderweise werden durch die gegenüber dem Stand der Technik hinzugefügten Komponenten C1 bzw. C2 der Rohton deutlich verbessert (+) unter Beibehaltung der mechanischen und rheologischen Eigenschaften, wie Kerbschlagzähigkeit bzw. Schmelzvolumenrate.

10

Tab. 4: Formmassen und ihre Eigenschaften

		Vergleich	Erf. 8	Erf. 9
A2	Gew.-Teile	40	40	40
D2	Gew.-Teile	60	30	-
C1	Gew.-Teile	-	30	60
E	Gew.-Teile	0,5	0,5	0,5
Kerbschlagzähigkeit Izod 23°C kJ/m <sup>2</sup>		7	7	7
Reißdehnung %		134	164	159
Perlglanzeffekt (visuelle Beurteilung)		0	+	++

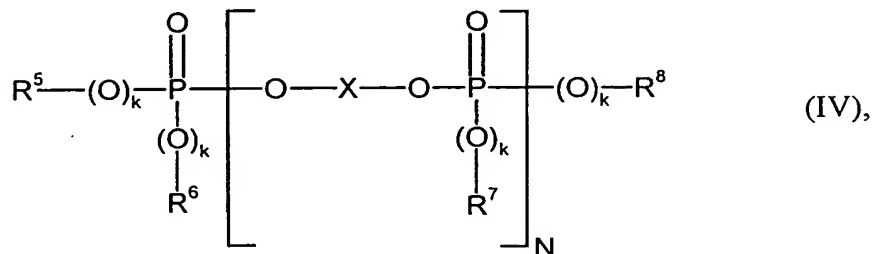
Die erfindungsgemäßen Formmassen weisen einen sehr schönen Perlglanzeffekt auf. Unter Beibehaltung der Kerbschlagzähigkeit und Verbesserung der Reißdehnung konnten aus dem Material erfolgreich Gehäuse für Mobiltelefone hergestellt werden.

**Patentansprüche**

1. Polymerblends enthaltend eine Komponente ausgewählt aus der Gruppe Poly-  
(ester)carbonat A, Pffropfpolymerisat B oder Mischungen hiervon, als zweite  
5 Komponente Polyalkylennaphthalat C sowie gegebenenfalls eine weitere  
Komponente D ausgewählt aus der Gruppe aus Vinyl(co)polymerisat D1,  
Polyalkylenterephthalat D2 oder Mischungen hiervon, wobei Mischungen aus  
Polycarbonat, Polyalkylennaphthalat und gegebenenfalls Polyalkylentereph-  
thalat kein Tetrafluorethylenpolymerisat enthalten.
- 10 2. Polymerblends nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass sie 0,2 bis  
99 Gew.-Teile Polyalkylennaphthalat enthalten, wobei die Summe der Ge-  
wichtsteile der Komponenten A + B + C + D 100 ergibt.
- 15 3. Polymerblends nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass sie 0,4 bis  
85 Gew.-Teile Polyalkylennaphthalat enthalten, wobei die Summe der Ge-  
wichtsteile der Komponenten A + B + C + D 100 ergibt.
- 20 4. Polymerblends nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass sie 0,6 bis  
75 Gew.-Teile Polyalkylennaphthalat enthalten, wobei die Summe der Ge-  
wichtsteile der Komponenten A + B + C + D 100 ergibt.
- 25 5. Polymerblends nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass sie Poly-  
carbonat, Polyalkylenterephthalat und Polyalkylennaphthalat enthalten.
6. Polymerblends nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass sie Poly-  
carbonat, Pffropfpolymerisat und Polyalkylennaphthalat enthalten.
- 30 7. Polymerblends nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass sie Pffropf-  
polymerisat, Polyalkylennaphthalat und gegebenenfalls Polyalkylentereph-  
thalat enthalten.



8. Polymerblends nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass sie Polycarbonat und Polyalkylennaphthalat, ausgenommen Tetrafluorethylenpolymerisat enthalten.
- 5
9. Polymerblends nach einem der Ansprüche 1 bis 8, dadurch gekennzeichnet, dass sie als Polyalkylennaphthalat Polyethylennaphthalat und/oder Polybutylennaphthalat enthalten.
- 10
10. Polymerblends nach einem der Ansprüche 1 bis 9, dadurch gekennzeichnet, dass die Pfropfgundlage B.2 ausgewählt ist aus mindestens einem Kautschuk aus der Gruppe der Dienkautschuke, EP(D)M-Kautschuke, Acrylat-, Polyurethan-, Silikon-, Chloropren- und Ethylen/Vinylacetat-Kautschuke.
- 15
11. Polymerblends nach einem der Ansprüche 1 bis 10, dadurch gekennzeichnet, dass sie mindestens einen Zusatz aus der Gruppe der Flammenschutzmittel, Stabilisatoren, Pigmente, Entformungsmittel, Fließhilfsmittel und/oder Antistatika enthalten.
- 20
12. Polymerblends nach Anspruch 11, dadurch gekennzeichnet, dass sie als Flammenschutzmittel Phosphate gemäß Formel (IV) enthalten



in welcher

R<sup>5</sup>, R<sup>6</sup>, R<sup>7</sup> und R<sup>8</sup> unabhängig voneinander jeweils gegebenenfalls halogeniertes C<sub>1</sub>-C<sub>8</sub>-Alkyl, jeweils gegebenenfalls durch Alkyl, und/oder Halogen. substituiertes C<sub>5</sub>-C<sub>6</sub>-Cycloalkyl, C<sub>6</sub>-C<sub>30</sub>-Aryl oder C<sub>7</sub>-C<sub>12</sub>-Aralkyl bedeuten,

5

X einen ein- oder mehrkernigen aromatischen Rest mit 6 bis 30 C-Atomen bedeutet,

k unabhängig voneinander 0 oder 1 sein kann und

10

N für Werte von 0 bis 30 steht.

13. Verwendung der Polymerblends nach einem der Ansprüche 1 bis 11 zur Herstellung von Formkörpern.

15

14. Formkörper, insbesondere Gehäuseteile, Abdeckplatten und Teile für den Kfz-Sektor, dadurch gekennzeichnet; dass sie unter Verwendung von Polymerblends nach einem der Ansprüche 1 bis 12 hergestellt werden.

Polymerblends enthaltend modifizierte Polyester

## Z u s a m m e n f a s s u n g

Die vorliegende Erfindung betrifft Polymerblends, enthaltend eine Komponente ausgewählt aus der Gruppe Poly(ester)carbonate, Pfropfpolymerisate oder Mischungen hiervon, als zweite Komponente Polyalkylennaphthalat sowie gegebenenfalls eine weitere Komponente ausgewählt aus der Gruppe aus Vinyl(co)polymerisate, Polyalkylenterephthalate oder Mischungen hiervon, wobei Mischungen aus Polycarbonat, Polyalkylennaphthalat und gegebenenfalls Polyalkylenterephthalat kein Tetrafluorethylenpolymerisat enthalten.

1984-10-10 10:10 2147

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**